2種の常磁性原子の混晶における相分離

名大工　　山下　護・中野藤生

磁性体の混晶では，原子の配置に関して，低温ではAB型（又はA_3B 型）の秩序，或は相分離の出現が考えられる。しかし後者については，合金という観点からは不都合な現象であるためか，その統計力学的研究は不十分な現状である。ここでは磁気的秩序と相分離との問題を対称破りポテンシャルの方法[1]を用いて論ずるが，適当な条件下では4重臨界点が現れる事が示される。

2種の常磁性原子（AとB）の混晶系のハミルトニアン　は次のように模型化される：

$$\mathcal{H} = -\sum_{(i,j)} \Bigg[(J_{AA} S_i S_j + V_{AA}) \frac{1+Q_i}{2} \frac{1+Q_j}{2} + (J_{BB} S_i S_j + V_{BB}) \frac{1-Q_i}{2} \frac{1-Q_j}{2} + (J_{AB} S_i S_j + V_{AB}) \left(\frac{1+Q_i}{2} \frac{1-Q_j}{2} + \frac{1-Q_i}{2} \frac{1+Q_j}{2} \right) \Bigg] \quad 。 \tag{1}$$

$Q_i = 1(-1)$ はA(B)が格子点 i に位置することを表す。S_i はイジングスピンで，1と－1の値をとる。強磁性的相互作用のみに限定すると，磁気的秩序の出現に伴い相分離が起ることが知られており，J_{AB} が小さい場合には相分離を促進し，逆に大きい場合には阻害する。[2] 又$J_{AB} > \mathrm{Max}(J_{AA}, J_{BB})$ の場合，AB型の秩序が出現する。このようにJ_{AB} の役割が知られているので，ここでは簡単のため，$J_{AA} : J_{AB} : J_{BB} = 1 : \alpha : \alpha^2$ $(0 \leq \alpha < 1)$，に限定する。しかし，AB型の秩序が出現しない条件下ではこの限定は厳しいものではない。この場合(1)式の$\mathcal{H}$は次のように変形される：

$$\mathcal{H} = -U\Sigma\sigma_i\sigma_j - V\Sigma Q_i Q_j + W\Sigma Q_i \quad 。 \tag{2}$$

ここで導入されたσ_i は $\sigma_i = \{(1+Q_i)/2 + \alpha(1-Q_i)/2\} S_i$ であり 1，α，$-\alpha$，－1の値をとる。又$U = J_{AA}$，$V = (V_{AA} - 2V_{AB} + V_{BB})/4$　である。A の濃度Cと$\langle Q_i \rangle$　との間には$C = (1 + \langle Q_i \rangle)/2$ の関係があるため，Wは $z(V_{BB} - V_{AA})/4$ で

あるが，Cに共役な量であり，AとBの化学ポテンシャルの差と考えることができる。ここではVを非負と限定しておく。

1次転移が起り得る体系の相転移を論ずるには熱力学的ポテンシャル$\Phi(\sigma, Q)$を用いるのが良い。$\Phi(\sigma, Q)$は次式により与えられる：

$$\Phi(\sigma, Q) = -kT\ln Z'(\sigma, Q), \tag{3}$$

$$Z'(\sigma, Q) = \Sigma^{\sigma, Q} e^{-\beta \mathcal{H}} \quad 。 \tag{4}$$

(4)の和は条件$\Sigma\sigma_i/N=\sigma$ 及び$\Sigma Q_i/N=Q$ を満すすべての状態についての和である。$\Phi(\sigma, Q)$を最小にするσとQがそれぞれ$\Sigma\sigma_i/N$ と$\Sigma Q_i/N$の平衡値である。ここで次の母関数$Z(\eta, \xi)$を定義すると，

$$Z(\eta, \xi) = \sum_{\sigma}\sum_{Q} e^{N\eta\sigma + N\xi Q} Z'(\sigma, Q) \tag{5}$$

$$= \Sigma e^{\eta\Sigma\sigma_i + \xi\Sigma Q_i} e^{-\beta\mathcal{H}} \quad , \tag{6}$$

これは対称破りの場η及びξが加わった場合の体系の状態和であり，(4)式に比し取扱いやすい。(5)式の逆変換及び(3)式により$\Phi(\sigma, Q)$が求まる。

ここでは(6)式の計算において逆温度展開法[3]によりβの1次近似に止めたが，これは平均場近似に相当するものである。$\alpha=1/3$の場合の相図を図1に示す。Vの値はUの単位でそれぞれ，(1) 0，(2) 0.0219 ，(3) 0.1081，(4) 0.5364，(5) 0.8144，(6) 0.9427である。破線とC軸とに囲まれた領域は共存領域で，その中では磁気的転移の転移温度を表す実線は意味がない。(2)の●印は4重臨界点，(3)，(4)，(5)の●印は3重臨界点である。類型的には図1は$\sqrt{3}-\sqrt{2}<\alpha<1$の$\alpha$の場合の相図に共通する。$\alpha=\sqrt{3}-\sqrt{2}$の場合，V＝0の相図は図1の(2)に相当し，Vが大きくなるに従い，(3)，(4)，(5)，(6)と変化していく。$0\leq\alpha<\sqrt{3}-\sqrt{2}$ の場合，V＝0の相図は(3)に相当する。αの値に対して4重臨界点が現れる。T，V，Wの値の組を図2に示しておく。

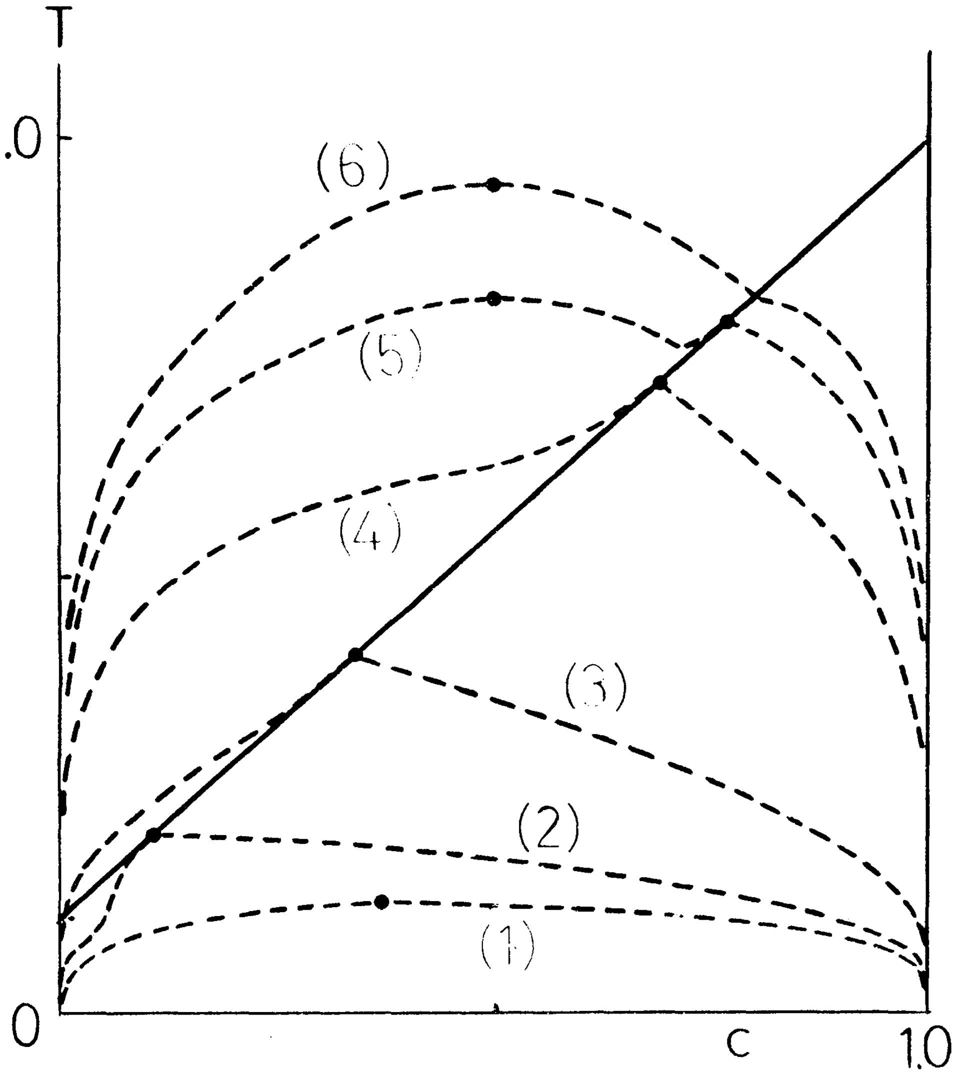

図　　1

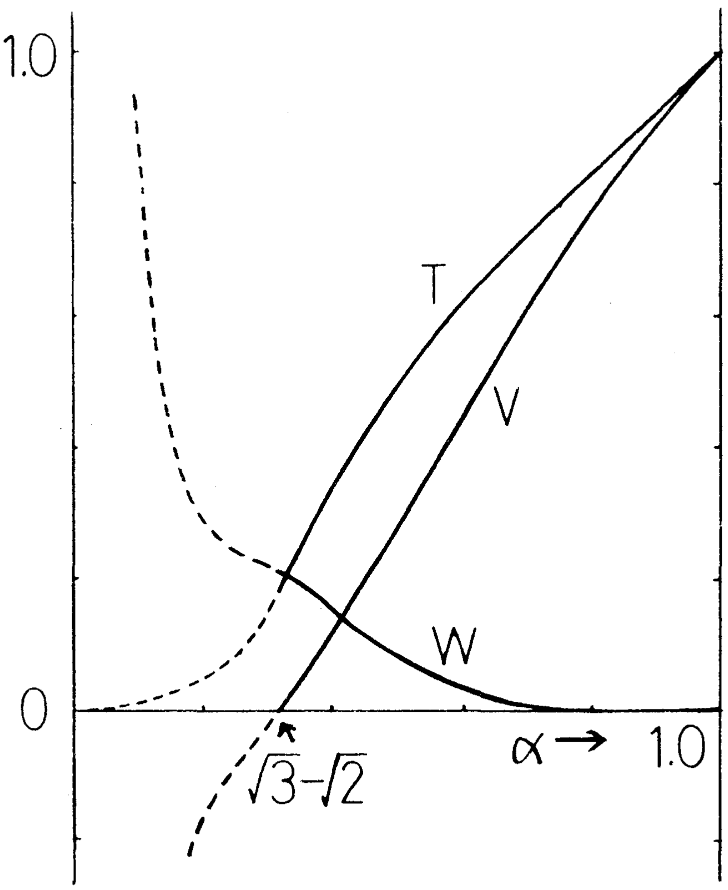

図　　2

参 考 文 献

1) H. Nakano and M. Hattori, Prog. Theor. Phys. **49** (1973), 1752.

2) T. Kawasaki, preprint.

笹部俊二，修士論文（名古屋大学）

3) W. Opechowski, Physica **4** (1937), 181.